

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**



2835

PATENT

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re application of

Katsuya SAKAYORI

Serial No.: 09/835,080

Group Art Unit: Unassigned

Filed: April 16, 2001

Examiner: Unassigned

For: LAMINATE FOR ELECTRONIC CIRCUIT

6

CLAIM FOR PRIORITY

Commissioner for Patents
Washington, D.C. 20231

Sir:

The benefit of the filing date of the following prior foreign application filed in the following country is hereby requested for the above-identified application and the priority provided in 35 U.S.C. 119 is hereby claimed:

Japanese Patent Appl. 2000-119418 filed on April 20, 1998.

In support of this claim, a certified copy of said original foreign application is filed herewith.

It is requested that the file of this application be marked to indicate that the requirements of 35 U.S.C. 119 have been fulfilled and that the Patent and Trademark Office kindly acknowledge receipt of this document.

Respectfully submitted,

PARKHURST & WENDEL, L.L.P.

November 6, 2001
Date

RECEIVED
MAR 22 2002
TC 1700

Roger W. Parkhurst
Roger W. Parkhurst
Registration No. 25,177

RWP/ddh
Attorney Docket No. DAIN:632
PARKHURST & WENDEL, L.L.P.
1421 Prince Street, Suite 210
Alexandria, Virginia 22314-2805
Telephone: (703) 739-0220
(rev. 10/97)

PLEASE ACCEPT THIS AS
AUTHORIZATION TO DEBIT
OR CREDIT FEES TO
DEP. ACCT. 16-0331
PARKHURST & WENDEL



日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日
Date of Application:

2000年 4月20日

出 願 番 号
Application Number:

特願2000-119418

出 願 人
Applicant(s):

大日本印刷株式会社

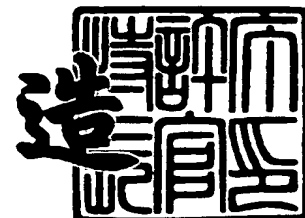
RECEIVED
NOV 13 2001
TC 2800 MAIL ROOM

RECEIVED
MAR 22 2002
TC 1700

2001年 9月28日

特 許 庁 長 官
Commissioner,
Japan Patent Office

及 川 耕 造



出証番号 出証特2001-3089265

【書類名】 特許願

【整理番号】 000417

【提出日】 平成12年 4月20日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 B32B 15/08

【発明者】

【住所又は居所】 東京都新宿区市谷加賀町一丁目1番1号 大日本印刷株式会社内

【氏名】 坂寄 勝哉

【特許出願人】

【識別番号】 000002897

【氏名又は名称】 大日本印刷株式会社

【代表者】 北島 義俊

【代理人】

【識別番号】 100099139

【弁理士】

【氏名又は名称】 光来出 良彦

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 012209

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9107599

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 積層体、絶縁フィルム、電子回路及び積層体の製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 第 1 金属層－絶縁層－第 2 金属層、又は、金属層－絶縁層からなる層構成の積層体であり、

該絶縁層が 2 種以上の層から形成され、

該絶縁層のうち、各金属層との接着界面側の絶縁層は熱可塑性樹脂層であり、

該熱可塑性樹脂層の T_g 以上の温度における貯蔵弾性率の極小値が 10^6 Pa 以下であることを特徴とする積層体。

【請求項 2】 前記絶縁層を構成する少なくとも 1 層が、ポリイミド樹脂又はポリイミドフィルムであることを特徴とする請求項 1 記載の積層体。

【請求項 3】 前記絶縁層を構成する全ての層がポリイミド樹脂又はポリイミドフィルムであることを特徴とする請求項 1 記載の積層体。

【請求項 4】 前記各金属層は、合金銅、銅及びステンレスから選ばれたものであり、第 1 金属層と第 2 金属層は同一又は異なる材料であることを特徴とする請求項 1、2 又は 3 記載の積層体。

【請求項 5】 請求項 1、2、3 又は 4 記載の積層体を用いて作製した電子回路。

【請求項 6】 絶縁層としての樹脂フィルム又は樹脂層の両面又は片面に、 T_g 以上の温度での貯蔵弾性率の極小値が 10^6 Pa 以下の熱可塑性樹脂層が設けられていることを特徴とする絶縁フィルム。

【請求項 7】 前記絶縁層のうち少なくとも 1 層がポリイミドフィルム又はポリイミド樹脂層であることを特徴とする請求項 6 記載の絶縁フィルム。

【請求項 8】 前記絶縁層の全てがポリイミドフィルム又はポリイミド樹脂であることを特徴とする請求項 6 記載の絶縁フィルム。

【請求項 9】 請求項 6 記載の絶縁フィルムを用いて作製された金属との積層体。

【請求項 10】 請求項 9 の積層体を用いて作製された電子回路。

【請求項 11】 コア絶縁層と、該コア絶縁層の両面或いは片面に配置され

る接着作用を持ち T_g 以上の温度における貯蔵弾性率の極小値が 10^6 Pa 以下の熱可塑性樹脂層と、該熱可塑性樹脂層の表面に配置される金属層を、 T_g 以上の温度で熱圧着することを特徴とする積層体の製造方法。

【請求項 12】 前記熱圧着は熱可塑性樹脂の貯蔵弾性率の極小値を示す温度で圧着を行うことを特徴とする請求項 11 記載の積層体の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、金属－絶縁層－金属、及び／又は、金属－絶縁層という層構成からなる積層体、及び複数種絶縁層よりなる絶縁層のみのフィルムに関し、絶縁性を有するその性質から主に、電子部品、特に絶縁層上に回路を形成するために用いる基板に関する。

【0002】

【従来の技術】

近年、半導体技術の飛躍的な発展により半導体パッケージの小型化、多ピン化、ファインピッチ化、電子部品の極小化などが急速に進み、いわゆる高密度実装の時代に突入した。それに伴い、プリント配線基板も片側配線から両面配線へ、さらに多層化、薄型化が進められている（岩田，原園，電子材料，35（10），53，（1996）．）。

【0003】

また、そのような配線・回路を形成する際のパターン形成方法は、金属－絶縁層－金属という層構成の基板上の金属を塩化第二鉄のような酸性溶液でエッチングし配線を形成した後、プラズマエッチング、ウェットエッチング、レーザーエッチング等で絶縁層を所望の形に除去し、めっきや導電ペースト等で配線間をつなぐ方法、または、感光性ポリイミド（特開平4－168441号公報）などを用いて絶縁層を所望の形に設けた後に、その空隙にめっきで配線を形成する方法（エレクトロニクス実装学会第7回研究討論会予稿集）などが行われている。

【0004】

近年の電気製品のダウンサイジングの流れにより、金属導体層－高分子絶縁層

それぞれの薄膜化が進んでおり、それぞれ100 μm以下の膜厚で用いられることが多い。このように薄膜で配線を作製した際、金属導体層－高分子絶縁層の熱膨張係数の差により、配線に反りを生じてしまう。また、金属導体層－高分子絶縁層－金属導体層であっても、回路形成パターン等が形成されていると、上下の金属導体層の面積が異なってくるために、配線に反りを生じてしまう。

【0005】

このような基板の反りは、絶縁層および導体層の熱的性質がわかれば、次式により、算出出来る（宮明，三木，日東技報，35（3），1，（1997））

【0006】

【数1】

$$\sigma = \frac{3 l E_1 E_2}{2 h (E_1^2 + 14 E_1 E_2^2)} \Delta \alpha \Delta T$$

【0007】

E1：金属の弾性率

E2：絶縁層の弾性率

Δα：金属－絶縁層間の熱膨張係数の差

ΔT：温度差

h：膜厚 l：配線長

この式により、配線の反りを低減させる方法として、

1. 絶縁層の弾性率の低減
 2. 絶縁層と金属配線層の熱膨張率差の低減
- の2種が考えられる。

【0008】

配線を形成する方法において、金属－絶縁層－金属、又は、金属－絶縁層という構成からなる積層体の金属をエッチングして配線を形成する方法に用いられる基板には、基板の反りを低減するため、金属と絶縁層との熱膨張率を同じにする必要性から、絶縁層として低膨張性のポリイミドが用いられている（USP4，

543, 295、特開昭55-18426号公報、特開昭52-25267号公報）。しかし、低膨張性のポリイミドは一般に熱可塑性ではないため、金属との接着性に乏しく、実用に耐えうるような密着力を得るのは困難である。そこで、金属との密着性の良好な熱可塑性のポリイミド系樹脂やエポキシ樹脂を金属と低膨張性ポリイミドの間の接着層として用いている。

【0009】

現在、パーソナルコンピュータの生産量の急激な伸びに伴い、それに組み込まれているハードディスクもまた生産量が増大している。ハードディスクにおける、磁気を読み取るヘッドを支持しているサスペンションといわれる部品も、ステンレスの板ばねに、銅配線を接続するものから、小型化への対応のためステンレスの板ばねに直接銅配線が形成されているワイヤレスサスペンションといわれるものへと主製品が移り変わりつつある。

【0010】

このようなワイヤレスサスペンションは3層材を用いて作製されているものが主流で、その原材料の層構成は、絶縁層の片側が銅の合金箔、もう一方がステンレス箔である。高速で回転するディスク上をスキャンすることから細かな振動が加わる部材であるため、配線の密着強度は非常に重要であり、厳しいスペックが求められている。配線の密着強度は、3層材の接着層の部分に大きく依存し、接着層の能力がそのまま製品となったときの密着強度を決定している。

【0011】

【発明が解決しようとする課題】

金属-絶縁層-金属、或いは金属-絶縁層のような積層体の絶縁層に用いられる樹脂には、特に長期間信頼性の要求される電子部材分野では、薄い膜厚でも良好な絶縁性を示すポリイミドやそれに類する樹脂が用いられている。しかしながら、ポリイミド系樹脂に接着性を持たせるためには、熱可塑性を与えるのが一般的ではあるが、具体的にポリイミド系樹脂の接着力と接着剤の物性の関係を検討した例は少ない。例えば、ポリイミド系樹脂の接着力を調査する手段としては、実際に圧着し剥離試験をするという、非常に手間のかかる作業を行なわなければならない現状がある。

【 0 0 1 2 】

そこで本発明は、金属－絶縁層－金属、又は、金属－絶縁層という層構成からなる積層体において、絶縁層と金属との間に大きな接着力が生ずる条件を見出し、該条件を満足する積層体、絶縁フィルム、該積層体を用いた電子回路を提供することを目的とする。

【 0 0 1 3 】

【課題を解決するための手段】

上記した問題点を解決するために、本発明者は、ポリイミド系樹脂の物性と接着力を鋭意検討した結果、樹脂の組成よりもその圧着温度での粘弾性挙動が接着力に非常に大きく影響していることを見出し、本発明を完成するに至った。

【 0 0 1 4 】

被着体の表面の凹凸に樹脂が食い込むことによって起こるアンカー効果を最大限に利用することは、接着力を高めるために寄与するものと考えられる。そのため、熱可塑性樹脂が流動性を持ち始める T_g 以上で圧着を行なうことが好ましい。ただし、その樹脂の構造の違いによって T_g 以上の温度での貯蔵弾性率に違いがあるため、 T_g （ガラス点移点）以上で圧着しても、得られる接着力には、違いが生じる。本発明者は、樹脂の流動性を示す指標である貯蔵弾性率に注目し、種々、組成の異なる熱可塑性樹脂の貯蔵弾性率と接着力の関係について検討した結果、 T_g 以上の温度における貯蔵弾性率が低いものほど接着性が良好であるという相関関係を見出した。貯蔵弾性率が、特に、 10^6 Pa 以下の値を示すような樹脂が、樹脂組成に関わらず被着体との接着性が良好である知見を得た。

【 0 0 1 5 】

このような結果より、 T_g 以上の温度での貯蔵弾性率が 10^6 Pa 以下である熱可塑性樹脂を用いることで、接着強度の良好な積層体を得ることができる。より好ましくは、貯蔵弾性率が 10^6 Pa \sim 10^2 Pa の範囲で接着強度の良好な積層体を得ることができる。 T_g 以上の貯蔵弾性率が 10^6 Pa 以上であると、積層体作製の圧着の際に、流動性が少なく被着体の表面の凹凸に樹脂が食い込みずらくアンカー効果を発揮しづらいので好ましくない。また、 T_g 以上の貯蔵弾性率が 10^2 Pa 以下であると接着機能は発揮するが接着層の流動性が大きくな

りすぎ積層体作製時の圧着工程で接着層が接着面からはみ出してしまいう問題点がある。

【 0 0 1 6 】

そこで、本発明の積層体は、第 1 金属層－絶縁層－第 2 金属層、又は、金属層－絶縁層からなる層構成の積層体であり、該絶縁層が 2 種以上の層から形成され、該絶縁層のうち、各金属層との接着界面側の絶縁層は熱可塑性樹脂層であり、該熱可塑性樹脂層の T_g 以上の温度における貯蔵弾性率の極小値が 10^6 Pa 以下であることを特徴とする。

【 0 0 1 7 】

以下に本発明について具体的に説明する。

【 0 0 1 8 】

接着剤と金属との接着力は、大きく 2 つの要因で決まる。一つは、接着剤の分子構造による金属表面に対する親和力や、金属との結合生成によるものであり、もう一つは、金属表面の凹凸に接着剤が食い込んで起こるアンカー効果によるものである。

【 0 0 1 9 】

前記金属表面に対する親和力には、金属表面との化学結合や配位結合、分子間相互作用（原子間相互作用）など一般に考えられる親和力、結合を含む。

【 0 0 2 0 】

本発明者は、圧着により接合された金属と接着剤の界面の接着力は、分子構造と金属の結合や親和力よりもアンカー効果の影響が強いこと、及び接着層の流動性に関する物性と接着力の関係を、鋭意検討した結果見出した。

【 0 0 2 1 】

一般に、接着剤となる樹脂の流動性が大きな樹脂の方がアンカー効果が起きやすいといわれているが、実際に、接着剤層の流動性を詳細に検討した例はなく、本発明の原理は接着力の良好な積層体を作製する上で非常に有効である。

【 0 0 2 2 】

被着体となる金属、フィルムは、特に限定されないが、表面が疎化处理されて

いたりして、ある一定の凹凸を持ったものの方がアンカー効果による接着強度が出やすい。しかし、接着剤層の厚みが被着体の凹凸の高さ以下である時は被着体と接着剤層の間に空間ができ接着力が落ちる。

【 0 0 2 3 】

熱可塑性樹脂

本発明で、金属層との接着界面側の絶縁層は熱可塑性樹脂が用いられる。金属と絶縁層との熱膨張率を同じにする必要性から、絶縁層として低膨張性であり、耐熱性の良好なポリイミドやそれに類似の性質の樹脂が好ましく使用される。本発明で熱可塑性樹脂とは、明確なガラス転移点を持つものを言う。しかしながら、耐熱性や絶縁性を有する樹脂であればイミド結合の有無によらず、樹脂は特に限定されない。本発明で好ましく使用できる熱可塑性樹脂には、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリエーテルイミド、マレイミド変性樹脂等のイミド結合を分子中に有する樹脂や、芳香族ポリエステル、芳香族ポリアミド等のガラス転移点の比較的高い樹脂などが挙げられるが、特に限定されない。

【 0 0 2 4 】

熱可塑性樹脂の T_g 以上の温度での貯蔵弾性率が低いものほど接着強度が高い相関関係の傾向にある。また、一般に貯蔵弾性率を下げるように樹脂を調製するとその熱可塑性樹脂の T_g が低い傾向になる。

【 0 0 2 5 】

本発明における貯蔵弾性率とは、圧着等で絶縁層と被着体を接着させるときに接着剤としての熱可塑性樹脂が示す状態での貯蔵弾性率を示し、最終形態の3層材になったときには熱履歴により分子構造等が接着工程時と比べて変化しているものもあるので、この変化した状態での貯蔵弾性率を意味しない。

【 0 0 2 6 】

本発明の熱可塑性樹脂の重量平均分子量は、その分子構造にもよるが一般に6000以上50000以下が好ましい。特に好ましくは8000以上80000以下である。分子量が50000以上であると、均一な塗膜を得難く、また、 T_g 以上の温度での貯蔵弾性率が大きくなるとともに流動性が小さくなり、アンカー効果を引き起こしにくくなる。一般に同一組成の樹脂は分子量が小さくなると T_g

(ガラス転移点) が下がり、 T_g 以上の温度での貯蔵弾性率が下がる。分子量が 6 0 0 0 以下では成膜性が悪く均一な熱可塑性樹脂層の塗膜を得られにくい。

【0 0 2 7】

また、接着剤としての熱可塑性樹脂は溶液の状態で塗布してもよいし、別な方法、例えば、フィルム形態で用いてもよい。さらに、前駆体やその誘導体の状態で適用し、成形後に処理を行うことで所望の化学構造に変換してもよい。

【0 0 2 8】

積層体

図 1 に本発明の積層体の層構成の一例を示す。1 は絶縁層であり、該絶縁層 1 の両面に熱可塑性樹脂層 2 が積層されており、一方の熱可塑性樹脂層 2 にはさらに金属層として銅箔 3 又は合金箔、他方の熱可塑性樹脂層 2 にはさらに金属層として SUS 箔 (ステンレス箔) 4 が積層されている。

【0 0 2 9】

絶縁層を構成する少なくとも 1 層を、ポリイミド樹脂又はポリイミドフィルムとしてもよい。或いは、絶縁層を構成する全ての層をポリイミド樹脂又はポリイミドフィルムとしてもよい。

【0 0 3 0】

各金属層は、好ましくは合金銅、銅及びステンレスから選ぶことができ、第 1 金属層と第 2 金属層は同一又は異なる材料でもよい。

【0 0 3 1】

絶縁フィルム

本発明の積層体を製造するための中間材料として、絶縁層としての樹脂フィルム又は樹脂層の両面又は片面に、 T_g 以上の温度での貯蔵弾性率の極小値が 10^6 Pa 以下の熱可塑性樹脂層を設けた絶縁フィルムの形態としてもよい。前記絶縁層を構成する樹脂層のうち少なくとも 1 層がポリイミドフィルム又はポリイミド樹脂を用いることができる。また、前記絶縁層を構成する全ての層がポリイミド樹脂又はポリイミドフィルムであってもよい。

【0 0 3 2】

積層体の製造方法

金属層と絶縁層からなる積層体の例として、第1金属層－絶縁層－第2金属層からなる積層体の製造方法として次のフィルム塗布法と金属塗布法を示すが特に限定されない。絶縁層としてポリイミドフィルムを用いた場合を例にして本発明の積層体の製造方法を説明する。

【0033】

1) フィルム塗布法

図2は、本発明の積層体の製造プロセスを示す工程図の一例である。図2のように(a)絶縁層1としてポリイミドフィルムを用意し、(b)該ポリイミドフィルムの両面に熱可塑性ポリイミド溶液を塗布し、溶媒を乾燥させて接着剤層としての熱可塑性樹脂層2を形成する。(c)熱可塑性樹脂層2が形成されたポリイミドフィルムの両面に銅箔3、SUS箔(ステンレス箔)4を密着させ、(d)熱可塑性樹脂層2のポリイミドの軟化点(T_g)以上の温度で、高い圧力をかけて熱圧着する。

【0034】

2) 金属塗布法

図3は、本発明の積層体の製造プロセスを示す工程図の他の例である。図3に示すように(a)銅箔3とSUS箔(ステンレス箔)4を用意する。(b)銅箔3とSUS箔4の各々の片面にそれぞれポリイミド溶液を塗布し、溶媒を乾燥させて熱可塑性樹脂層2を形成する。(c)熱可塑性樹脂層2が形成された銅箔3、SUS箔(ステンレス箔)4の熱可塑性樹脂層2を内側にして対向させて、絶縁層1としてポリイミドフィルムを挟み密着させ、(d)熱可塑性樹脂層2の軟化点(T_g)以上の温度で、高い圧力をかけて熱圧着する。

【0035】

前記各方法における熱圧着は、熱可塑性樹脂の貯蔵弾性率の極小値を示す温度で圧着を行うことが、熱可塑性樹脂の流動性が最も良好となり、被着体の表面の凹凸に熱可塑性樹脂が食い込むことによって起こるアンカー効果を最大限に発揮させることができ、金属層及びコア絶縁層との接着力が高まるので好ましい。

【0036】

電子回路

電子回路の形成は、一般的には以下の方法で行うことができる。

【0037】

まず、回路を形成したい側の金属表面に感光性樹脂層を塗布又はラミネートによって形成する。そこに、所望のパターンの像が描かれたマスクを密着させ感光性樹脂が感度を持つ波長の電磁波を照射する。所定の現像液でポジ型感光性樹脂であれば感光部を、ネガ型感光性樹脂であれば未露光部を溶出させ、所望の回路の像を金属上に形成する。その状態のものを塩化第二鉄水溶液のような金属を溶解させる溶液に浸漬又は、溶液を基板に噴霧することで露出している金属を溶出させた後に、所定の剥離液で感光性樹脂を剥離し回路とする。

【0038】

また、絶縁層のエッチングが必要な場合は、そのようにして形成した回路上に同様にして所望のパターンを形成した後に、ドライ又はウェットプロセスで絶縁層をパターニングすることもできる。

【0039】

【実施例】

動的粘弾性試験

動的粘弾性試験に用いた樹脂には、前駆体タイプのポリイミドとして三井化学株式会社製ポリアミック酸ワニス：PAA-A（商品名）；ポリアミドイミドとして東洋紡株式会社製ポリアミドイミドワニス：N8020（商品名）；溶剤可溶型の閉環タイプのポリイミドとして新日本理化株式会社製ポリイミドワニス：SN-20（商品名）、PN-20（商品名）及びEN-20（商品名）を用いた。接着性試験に用いた基材としての金属箔には、圧延銅箔である福田金属箔粉株式会社製RCF-T5B（商品名） $18\mu\text{m}$ （膜厚）、ステンレス箔である新日本製鉄社製SUS304H-TA箔（商品名） $20\mu\text{m}$ （膜厚）を用いた。さらに、ポリイミドフィルムとして鐘淵化学社製APIKAL NPIフィルム（商品名） $75\mu\text{m}$ （膜厚）を樹脂との密着性の検討のために用いた。

【0040】

前記各樹脂を $10\text{cm}\times 10\text{cm}$ 膜厚 $12\mu\text{m}$ の各基材上にコーティングし、PAA-A（商品名）以外は 180°C 30分オープンにて乾燥した。PAA-A

(商品名)は、アミック酸ワニスであるので120℃15分の乾燥工程で溶媒を除去後、所定の操作をして熱イミド化してポリイミドとした。約20 μ m膜厚の塗膜とした後、液温50℃、45ボーマ塩化第二鉄中において基材のエッチングを行ない、各々のコーティング基材を得た。それを長さ約1.5cm、幅5mmに切り出しRheometric Scientific社製粘弾性測定装置RSA-II(商品名)で、サンプル長:8mm、サンプル幅:5mm、昇温速度:5℃/min、Frequency:3.0Hzで、室温から400度まで昇温し、各温度における貯蔵弾性率の測定を行なった。

【0041】

得られた測定値を基にして各樹脂のT_g以上の温度での貯蔵弾性率の極小値を得、その結果を下記の表1に示す。

【0042】

接着性評価

接着層と基材の間で剥離が起きないように、基材の表面に意図的に凹凸を設け、必ず、被着体と接着層との界面剥離、または、接着層の凝集破壊が起こるようにした。厚さ100 μ mのSUS304板の表面を、マコー株式会社製ウェットブラスト装置を用いて、砥材として#1000のアルミナを用いて、0.7kg/cm²の圧力で10mm/secのスキャン速度で表面を疎化した後、超音波洗浄を30分純水で行ない表面に付着した砥材を落とした。片面のみ粗化するとSUS304板が反るため、両面疎化を行なった。その後、表面に2~3 μ mの塗膜をスピコートで作製し前述の条件で乾燥、またはイミド化しSUS304板上に接着層を設けた。それぞれ接着したい金属、フィルムと積層し、各サンプルの貯蔵弾性率をもっとも小さくなる温度で面圧1MPaで10分間真空圧着を行なってサンプルを作製した。ここで、粘弾性測定から得られたTan δ のピークをT_gとした。

【0043】

そのサンプルを押し切りカッターで1cm幅に切り、インストロン社製材料試験機type5565で500mm/minの引っ張り速度で90℃剥離試験を行なった。接着性と、T_g、貯蔵弾性率の最も低い点の結果を下記表1に示す。

【0044】

【表1】

		T _g	T _g 以上の温度で 貯蔵弾性率の 極小値	基 材		
				RCF - T5B	SUS304 H-TA	APIKAL NPI
熱 可 塑 性 樹 脂	PAA-A	205℃	$1.2 \times 10^4 \text{ Pa}$	1250g/cm	1300g/cm	920g/cm
	N8020	315℃	$1.0 \times 10^8 \text{ Pa}$	190g/cm	10g/cm	270g/cm
	SN-20	305℃	$1.0 \times 10^7 \text{ Pa}$	250g/cm	70g/cm	200g/cm
	PN-20	285℃	$1.5 \times 10^6 \text{ Pa}$	300g/cm	200g/cm	360g/cm
	EN-20	160℃	$1.0 \times 10^4 \text{ Pa}$	1250g/cm	820g/cm	1600g/cm

【0045】

表1の結果から、貯蔵弾性率と接着強度との関係を、横軸に貯蔵弾性率（Pa）、縦軸に接着強度をとったグラフとして図4に示す。図4において、◆印は福田金属箔粉株式会社製RCF-T5B箔（商品名）、■印は新日本製鉄社製SUS304H-TA箔（商品名）、▲印は鐘淵化学社製APIKAL NPIフィルム（商品名）を示す。図4のグラフによれば、T_g以上の温度での貯蔵弾性率が小さいものが各基材との密着力が良好であることが分かる。

【0046】

積層体の製造

ポリイミドコアフィルムとして、膜厚12.5μmのアピカルNPIフィルム（商品名、鐘淵化学社製）を厚さ100μmのSUS304板に貼り付けた。その基板に貼り付けたポリイミドフィルムの片面にスピンコーティングによって最終膜厚が約2μmになるように新日本理化株式会社製熱可塑性ポリイミドワニスEN-20を塗布し、180℃30分の条件で大気中で溶媒を除去した。その後、基板からフィルムを剥がし、裏返してまた基板に貼り付け、同様の方法で接着層

を設けた。このようにして作製した接着層が両面に形成されたフィルムを、 $20\mu\text{m}$ 厚の SUS 304 HTA と、福田金属箔粉株式会社製圧延銅箔 RCF-T5B（厚み $18\mu\text{m}$ ）の間に挟み込み、 300°C 、 1MPa 、10分の条件で真空圧着を行った。

【0047】

種々のサンプルについて同様の手法で積層体を形成し、回路を以下の手法で形成した。積層体に圧着する温度は、動的粘弾性試験で貯蔵弾性率が最も低かった温度とし、圧力、時間は、 1MPa 、10分で統一した。また、三井化学製のポリアミック酸ワニス：PAA-A（商品名）については、前駆体ワニスであるため、フィルムの両面にタックフリーの前駆体層を形成後、所定の方法で両面同時に熱イミド化を行い接着層付きフィルムを得、積層化した。

【0048】

回路の形成は、3層材の銅側に旭化成株式会社製ネガ型ドライフィルム：サンフォートAQ5038をラミネートしたものを、所定のマスクを用いて密着露光機で露光後、1%炭酸ナトリウム水溶液で現像後、45ボーマ塩化第二鉄水溶液に浸漬し露出している銅を除去後、 50°C の3%水酸化ナトリウム水溶液に1分間浸漬し、ドライフィルムを除去した。

【0049】

作製した3層材から得られた回路は、所望の形状に回路が形成されていた。

【0050】

【発明の効果】

本発明によれば、熱可塑性樹脂層の T_g 以上の温度における貯蔵弾性率の極小値が 10^6Pa 以下の熱可塑性樹脂を金属層と絶縁層の界面に接着剤層として配置することにより、金属層と絶縁層の接着力の良好な積層体を得ることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】

本発明の積層体の層構成の一例を示す図である。

【図2】

本発明の積層体の製造プロセスを示す工程図の一例である。

【図 3】

本発明の積層体の製造プロセスを示す工程図の他の例である。

【図 4】

表 1 の結果から、貯蔵弾性率と接着強度 (g / cm^2) との関係を横軸に貯蔵弾性率 (Pa)、縦軸に接着強度をとったグラフである。

【符号の説明】

- 1 絶縁層
- 2 熱可塑性樹脂層
- 3 銅箔
- 4 SUS箔 (ステンレス箔)

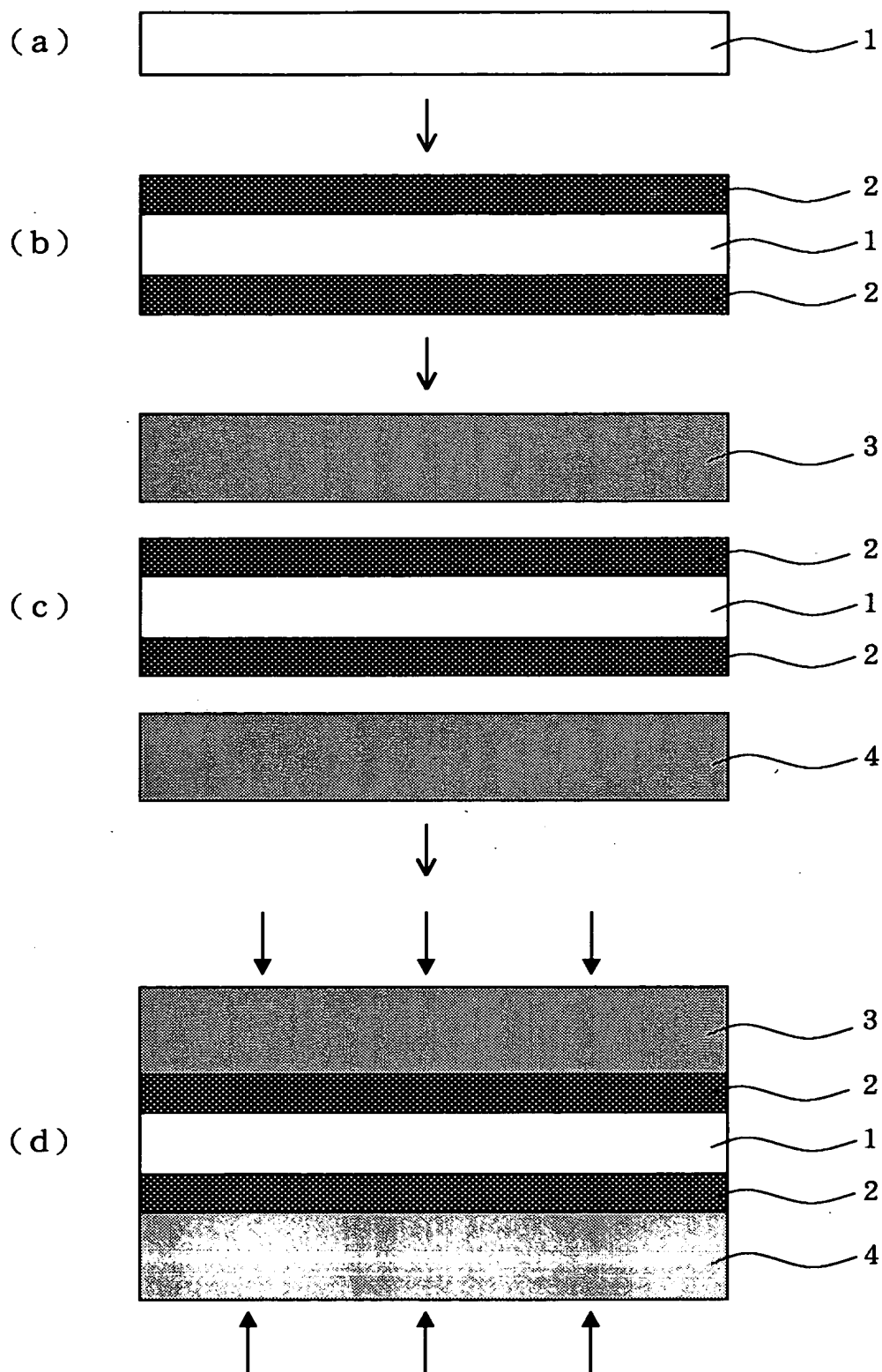
【書類名】

図面

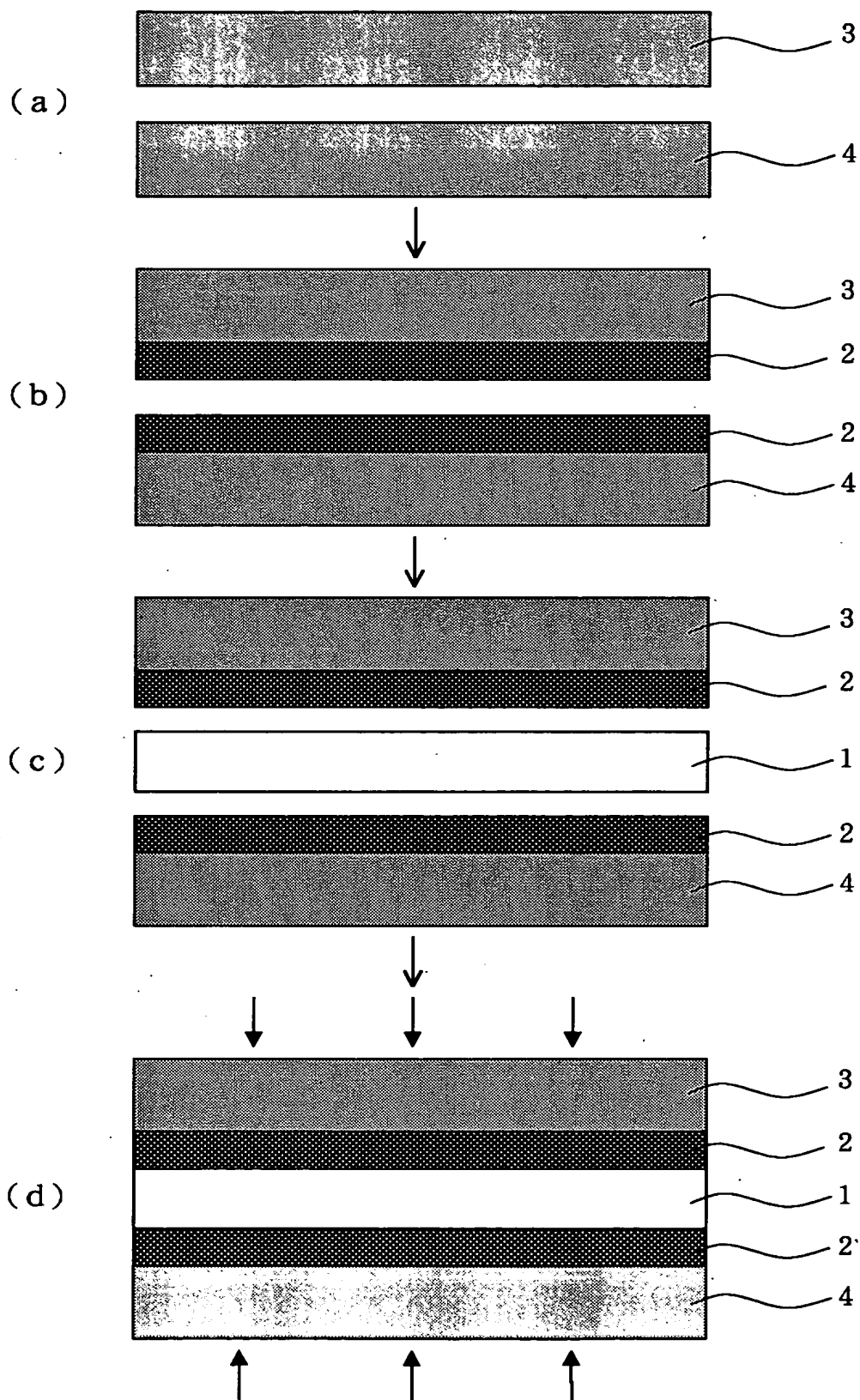
【図 1】



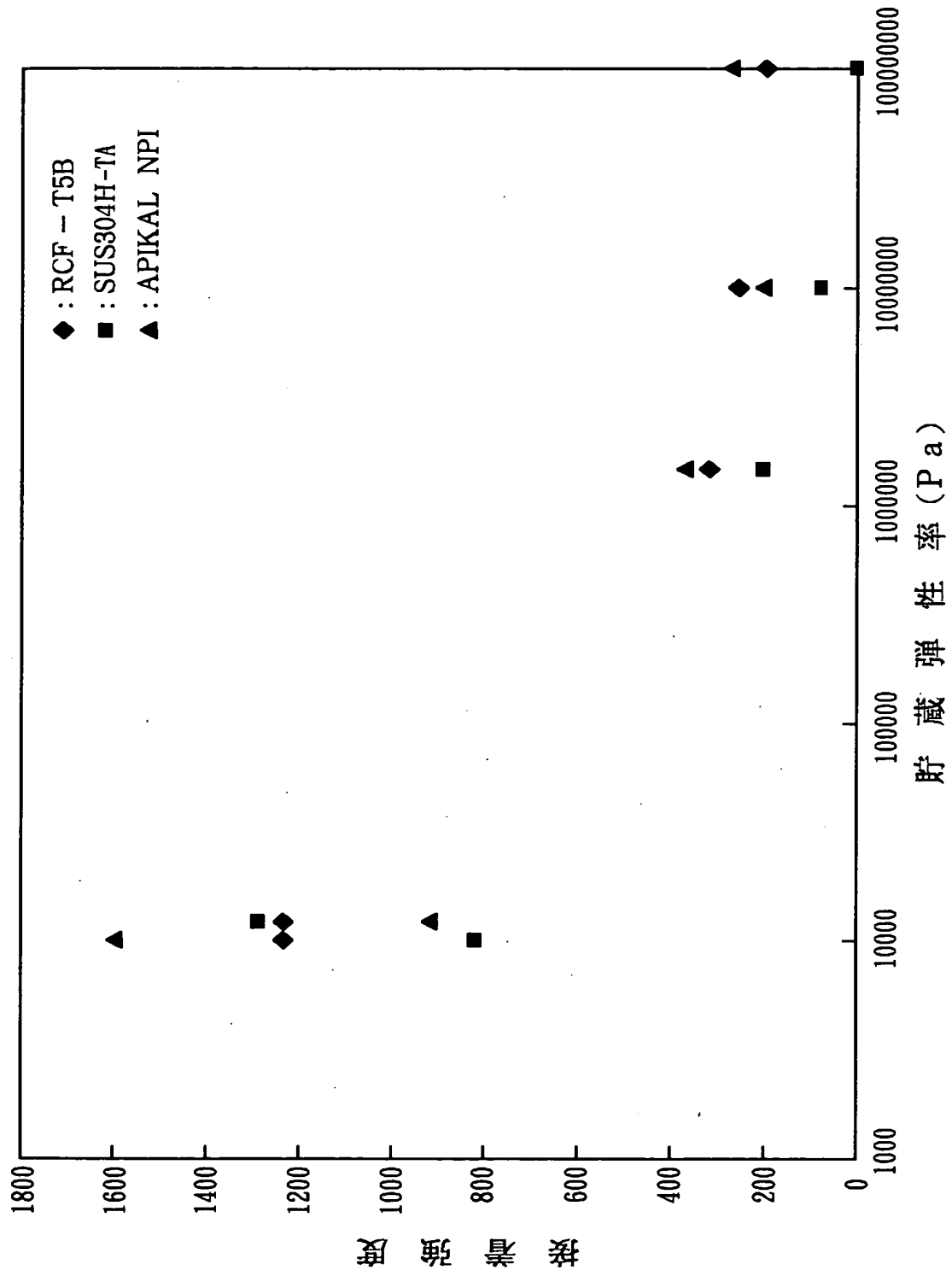
【図 2】



【図 3】



【図 4】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 金属－絶縁層－金属、金属－絶縁層という層構成からなる積層体において、絶縁層と金属との間に大きな接着力が生ずる条件を見出し、該条件を満足する積層体、絶縁フィルム、該積層体を用いた電子回路を提供する。

【解決手段】 第 1 金属層－絶縁層－第 2 金属層、又は、金属層－絶縁層からなる層構成の積層体であり、該絶縁層 1 が 2 種以上の層から形成され、該絶縁層 1 のうち、各金属層（銅箔 3、S U S 箔 4）との接着界面側の絶縁層 1 は熱可塑性樹脂層 2 であり、該熱可塑性樹脂層 2 の T g 以上の温度における貯蔵弾性率の極小値が 1 0 6 P a 以下である。

【選択図】 図 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000002897]

1. 変更年月日 1990年 8月27日

[変更理由] 新規登録

住 所 東京都新宿区市谷加賀町一丁目1番1号

氏 名 大日本印刷株式会社